#### PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number:

2000-188129

(43)Date of publication of application: 04.07.2000

(51)Int.CI.

H01M 10/40

(21)Application number: 10-363939

3939 (71)Applicant: HITACHI MAXELL LTD

(22)Date of filing:

22.12.1998 (72

(72)Inventor: SHIRASAWA KO

KAWAI TETSUO

**KUZE SADAMU** 

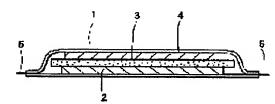
#### (54) POLYMER ELECTROLYTE BATTERY

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a polymer electrolyte battery excellent in load characteristics, by maintaining strength of gel polymer

electrolyte.

SOLUTION: Electrolyte containing 4-40 wt.% of a multifunctional monomer with four or more functions is impregnated in at least either one of a positive electrode 1, a negative electrode 2 or a separator 3, an active ray is irradiated on it, the monomer in the electrolyte is polymerized and the electrolyte is gelatinized. A quantity of the monomer remained in the gel polymer electrolyte obtained by the above process is maintained at not more than 40 wt.% of the quantity of the monomer inputted and not more than 3 wt.% of the total quantity of the electrolyte.



#### **LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

BEST AVAILABLE COPY

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

# This Page Blank (uspto)

(19) 日本国特許庁(JP)

## (12) 公開特許公報 (A) (11) 特許出願公開番号

特開2000-188129 (P2000-188129A) (43)公開日 平成12年7月4日(2000.7.4)

(51) Int. C 1.<sup>7</sup>

識別記号

FI

テーマコード(参考)

H 0 1 M 10/40

H 0 1 M 10/40 B 5H029

審査請求 未請求 請求項の数2

0 L

(全7頁)

(21) 出願番号

(22) 出願日

特願平10-363939

平成10年12月22日(1998.12.22)

(71)出願人 000005810

日立マクセル株式会社

大阪府茨木市丑寅1丁目1番88号

(72)発明者 白澤 香

大阪府茨木市丑寅一丁目1番88号 日立マ

クセル株式会社内

(72)発明者 川合 徹夫

大阪府茨木市丑寅一丁目1番88号 日立マ

クセル株式会社内

(74)代理人 100078064

弁理士 三輪 鐵雄

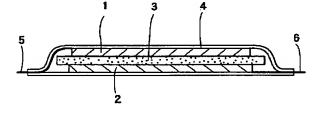
最終頁に続く

#### (54) 【発明の名称】ポリマー電解質電池

#### (57) 【要約】

【課題】 ゲル状ポリマー電解質の強度を維持し、負荷 特性が優れたポリマー電解質電池を提供する。

【解決手段】 四官能以上の多官能モノマーを4~10 重量%含有する電解液を、正極、負極またはセパレータ の少なくとも一つに含浸させ、活性光線を照射して、電 解液中のモノマーを重合するとともに電解液をゲル化す ることによって得られるゲル状ポリマー電解質中に残存 するモノマー量を、投入モノマー量の40重量%以下で かつ電解液総量の3重量%以下にする。



#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】 四官能以上の多官能モノマーを4~10 重量%含有する電解液を、正極、負極またはセパレータの少なくとも一つに含浸させ、紫外線を照射して、電解液中のモノマーを重合するとともに電解液をゲル化することによって得られるゲル状ポリマー電解質において、ゲル状ポリマー電解質中に残存するモノマー量が投入モノマー量の40重量%以下でかつ電解液総量の3重量%以下であることを特徴とするポリマー電解質電池。

【請求項2】 四官能以上の多官能モノマーがジベンタエリスリトールへキサアクリレートである請求項1記載のポリマー電解質電池。

#### 【発明の詳細な説明】

#### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、ポリマー電解質電池に関し、さらに詳しくは、特に携帯用機器、電気自動車、ロードレベリングなどに使用するのに適したポリマー電解質電池に関する。

#### [0002]

【従来の技術】ポリマー電解質電池では、電解質をシート状にすることができ、それによって、A4版、B5版などの大面積でしかも薄形の電池の作製が可能になり、各種薄形製品への適用が可能になって、電池の使用範囲が大きく広がっている。特にポリマー電解質を用いた電池は、耐漏液性を含めた安全性、貯蔵性が優れており、しかも薄く、フレキシブルなので、機器の形状に合わせた電池を設計できるという、今までの電池にない特徴を持っている。

【0003】このポリマー電解質電池は、通常、アルミニウムフィルムを芯材にしたラミネートフィルムを外装 30体として用い、薄いシート状の電極とポリマー電解質を保持するシート状のセパレータとの積層体を上記外装体で外装することによって、薄形電池に仕上げられる。

#### [0004]

【発明が解決しようとする課題】このポリマー電解質電池におけるポリマー電解質は、本質的に遊離の液を含まないが、電池特性の向上を図るため、完全な固体電解質ではなく、ゲル状にしている。

【0005】このゲル状ポリマー電解質は、電解液を固定し、かつ良好な充放電特性を保持することが必要であるが、従来のゲル状ポリマー電解質では、高温になるとゲルが軟化して漏液を引き起こすという問題があった。
【0006】すなわち、従来は、電解液をゲル化してゲル状ポリマー電解質にするためのゲル化成分として、ポリフッ化ビニリデン、ポリアクリルニトリル、ポリエチレンオキサイドなどのポリマーを用いていた(例えば、特公平7-32022号公報など)が、このようなポリマーを用いてゲル化した場合には、高温になるとゲルが軟化して液状化し、漏液を引き起こすという問題があった。

【0007】そのため、本発明者らは、活性光線の照射により重合する多官能モノマーをゲル化成分として用いることにより、ゲル化に際して重合時間を短縮し、生産性を高めるとともに、高温環境下においても漏液のおそれがないポリマー電解質電池を開発し、それについて既に特許出願をしてきた(特願平10-236853号)。

【0008】しかしながら、上記電池についてさらに検討を重ねていくと、上記多官能モノマーも100%重合10 させることができず、そのゲル状ポリマー電解質中に残存するモノマー量が電池特性に大きな影響を与えることが判明した。

【0009】つまり、ゲル状ポリマー電解質が果たすべき役割としては、短絡を防止するために正極の活物質粒子や負極の活物質粒子を隔離するとともに、電解質としてイオン伝導性を付与し、正極活物質と負極活物質とを反応させることが求められている。

【0010】そして、上記のような短絡防止のための隔離機能はゲル状ポリマー電解質の強度に依存し、このゲル状ポリマー電解質の強度はゲル状ポリマー電解質中に含まれるポリマー量に依存する。従って、短絡を防止するためには、電解液中のモノマー量を多くし、ゲル状ポリマー電解質中に含まれるポリマーを多くし、ゲル状ポリマー電解質の強度を高くすればよい。

【0011】しかしながら、電解液中のモノマー量を多くすれば、ゲル状ポリマー電解質の強度が高くなりすぎて、イオン伝導度が低下するおそれがあるし、また、ゲル状ポリマー電解質中に残存するモノマー量も多くなる。

【0012】モノマーがゲル状ポリマー電解質中に残存すると、モノマーは電解液の構成溶媒であるエチレンカーボネートやプロピレンカーボネートなどに比べて粘度が高く、イオンの移動を阻害するので、残存モノマー量が多くなることは好ましくない。そのため、モノマーの重合率を高くすることが必要になるが、重合率を高めるには、反応時間を長くしたり、開始剤を増量するなどの手段が必要であり、そのため、生産性が低下したり、電気化学反応に関与しない材料の混入により電池特性が低下するおそれがある。

【0013】また、重合してポリマーになった部分は、 ゲル状ポリマー電解質中に固定されるので、電極材料、 特に負極の炭素系材料などと接触することがなく、電池 中でも安定に存在するが、モノマーが遊離状態で存在す ると、その遊離のモノマーがリチウムイオンに配位し、 イオンの移動を阻害したり、炭素系材料の表面に付着して、リチウムイオンが炭素の層間に侵入するのを妨げ、 負荷特性などを低下させることが判明した。

【0014】本発明は、上記のような従来技術における 問題点を解決し、ゲル状ポリマー電解質の強度を維持 50 し、負荷特性が優れたポリマー電解質電池を提供するこ 3

とを目的とする。

#### [0015]

【課題を解決するための手段】本発明は、電解液をゲル 化するためのゲル化用モノマーとして四官能以上の多官 能モノマーを電解液中に4~10重量%含有させて用 い、ゲル化後のゲル状ポリマー電解質電池中の残存モノ マー量を規制することによって、上記課題を解決したも のである。

【0016】すなわち、本発明は、四官能以上の多官能 極またはセパレータの少なくとも一つに含浸させ、その 状態で活性光線を照射して、電解液中のモノマーを重合 させるとともに電解液をゲル化して得られるゲル状ポリ マー電解質中に残存するモノマー量を、投入モノマー量 の40重量%以下でかつ電解液総量の30重量%以下に したことを特徴とするポリマー電解質電池に関する。

#### [0017]

【発明の実施の形態】本発明において、残存するモノマ 一量を投入モノマー量(すなわち、電解液中に含有させ たモノマー量)の40重量%以下に規制するのは、残存 20 するモノマー量が投入モノマー量の40重量%より多く なると、負荷特性などの低下が大きくなるからであり、 30重量%以下がより好ましく、10重量%以下がさら に好ましい。また、本発明においては、残存するモノマ ーの量が電解液総量の3重量%以下に規制するのは、残 存するモノマー量が電解液総量の3重量%より多くなる と、分子量の大きいモノマーがリチウムイオンに配位 し、リチウムイオンの移動速度が低下し、かつ、リチウ ムイオンが炭素層間に入りにくくなるからである。

【0018】本発明において、ゲル状ポリマー電解質を 30 形成するために電解液に添加する四官能以上の多官能モ ノマーとは、紫外線の照射により重合可能な二重結合を 一分子あたり4個以上有するモノマーであって、このよ うな四官能以上の多官能モノマーとしては、例えば、ペ ンタエリスリトールテトラアクリレート、ジトリメチロ ールプロパンテトラアクリレート、エトキシ化ペンタエ リスルトールテトラアクリレート、ジペンタエリスリト ールヒドロキシベンタアクリレート、ジベンタエリスリ トールヘキサアクリレートなどの四官能以上のアクリレ ートおよび上記アクリレートと同様の四官能以上のメタ クリレートなどが挙げられる。

【0019】本発明においては、この四官能以上の多官 能モノマーの電解液中の含有量(電解液中への添加 量)、つまり、四官能以上の多官能モノマーの電解液中 の濃度を4~10重量%に規定しているが、これは四官 能以上の多官能モノマーの濃度が上記範囲より低い場合 は、ゲル状ポリマー電解質の強度を高めて短絡を防止す る効果が充分に得られず、四官能以上の多官能モノマー の濃度が上記範囲より高い場合は、負荷特性などが低下 するからである。

【0020】本発明において、活性光線としては、例え ば、紫外線(UV)、電子線(EB)、可視光線、遠赤 外線などを使用することができる。

【0021】上記ゲル状ポリマー電解質のベースとなる 電解液は、有機溶媒に溶質となる無機イオン塩を溶解さ せることによって調製される。上記有機溶媒としては、 この種の電池の電解液の調製にあたって使用可能なもの をいずれも使用することができるが、その好適な具体例 を示すと、例えば、ジメチルカーポネート、ジエチルカ モノマーを4~10重量%で含有する電解液を正極、負 10 ーポネート、メチルエチルカーポネート、プロピオン酸 メチル、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネー ト、ブチレンカーポネート、ガンマーブチロラクトン、 エチレングリコールサルファイト、1,2-ジメトキシ エタン、1.3-ジオキソラン、テトラヒドロフラン、 2-メチルーテトラヒドロフラン、ジエチルエーテルな どが挙げられ、これらはそれぞれ単独で用いることがで きるし、また、2種以上併用することもできる。さら に、アミン系またはイミド系有機溶媒や、含イオウ系ま たは含フッ素系有機溶媒なども用いることができる。

【0022】無機イオン塩としては、例えば、LiCl O4 LiPF6 LiBF4 LiAsF6 LiS bF<sub>6</sub>, LiCF<sub>3</sub> SO<sub>3</sub>, LiC<sub>4</sub> F<sub>9</sub> SO<sub>3</sub>, Li CF<sub>3</sub> CO<sub>2</sub>, Li<sub>2</sub> C<sub>2</sub> F<sub>4</sub> (SO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, LiN  $(CF_3SO_2)_2$ , LiC  $(CF_3SO_2)_3$ , Li  $C_n F_{2n+1}SO_3 \quad (n \ge 2), LiN (RfOSO_2)$ 2 [ここでRfはフルオロアルキル基]などが単独でま たは2種以上混合して用いられ、この無機イオン塩の電 解液中の濃度としては、0.5~1.5mol/l、特 に0.9~1.25mol/1程度が好ましい。

【0023】前記四官能以上の多官能モノマーを電解液 に添加するにあたって、必要であれば、重合開始剤とし て、例えば、ベンゾイル類、ベンゾインアルキルエーテ ル類、ベンゾフェノン類、ベンゾイルフェニルフォスフ ィンオキサイド類、アセトフェノン類、チオキサントン 類、アントラキノン類などを使用することができ、さら に重合開始剤の増感剤としてアルキルアミン類、アミノ エステルなども使用することもできる。

【0024】本発明において、正極活物質としては、特 に限定されることなく種々のものを用い得るが、リチウ 40 ムを含む遷移金属酸化物がエネルギー密度が高く、可逆 性に優れていることから好適に用いられ、具体的には、 例えば、LiCoО2 などのリチウムコバルト酸化物、 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> などのリチウムマンガン酸化物、LiN iO2 などのリチウムニッケル酸化物、それらの混合 物、さらにはLiNiO2のNiを一部をCoあるいは Mnで置換したものなどが好適に用いられる。

【0025】また、本発明において、負極活物質として は、リチウムイオンをドープ・脱ドープできる物質であ れば特に限定されることなく種々のものを用い得るが、 50 特に炭素系材料が好適に用いられ、具体的には、例え

5

ば、黒鉛、熱分解炭素類、コークス類、ガラス状炭素 類、有機高分子化合物の焼成体、メソカーボンマイクロ ビーズ、炭素繊維、活性炭、グラファイトなどが好適に 用いられる。

【0026】本発明において、セパレータとしては、例 えば、不織布、微多孔性フィルムなどが用いられる。

【0027】ゲル状ポリマー電解質を含む電極やセパレ ータを得る方法としては、例えば、活物質と必要な添加 剤を含む塗料を集電体上に塗布し、乾燥して合剤層を形 成することによって作製した電極やセパレータに四官能 10 以上の多官能モノマーを含有する電解液を塗布するか、 または四官能以上の多官能モノマーを含有する電解液に 電極やセパレータを浸漬することによって、四官能以上 の多官能モノマーを含有する電解液を電極やセパレータ に含浸させ、その状態で活性光線を照射して、モノマー を重合させるとともに電解液をゲル化することによって 得られる。

#### [0028]

【実施例】つぎに、実施例を挙げて本発明をより具体的 に説明する。ただし、本発明はそれらの実施例のみに限 20 定されるものではない。なお、以下の実施例などにおい て溶液や分散液の濃度を示す%は重量%である。

#### 【0029】実施例1

下記の組成で正極合剤層形成用塗料を調製した。 正極合剤層形成用塗料の組成:

LiCoO2

89.0重量部

アセチレンプラック

5.0重量部

ポリフッ化ビニリデン

6.0重量部

Nーメチルピロリドン

100.0重量部

【0030】上記塗料の調製は、各成分をプラネタリー ミキサーにて60分間混合することによって行った。そ して、得られた塗料をプレードコーターにて厚さ 3 0 μ mのアルミニウム箔上に乾燥後の厚さが100μmにな るように塗布し、乾燥して集電体となるアルミニウム箔 上に正極合剤層を形成することによって正極を作製し

【0031】つぎに、下記の組成で負極合剤層形成用塗 料を調製した。上記塗料の調製にあたって負極活物質と して使用したコークスは、その(002)面の面間距離 dooz が3.4Åで、c軸方向の結晶子の大きさLcが 40 3 2 A であった。

#### 負極合剤層形成用塗料の組成:

コークス

83.0重量部

アセチレンブラック

2. 0重量部

ポリフッ化ビニリデン

15.0重量部

Nーメチルピロリドン

90.0重量部

【0032】上記塗料の調製は、各成分をプラネタリー ミキサーにて60分間混合することによって行った。そ して、得られた塗料をプレードコーターにて厚さ 1 0 μ  $\mathbf{m}$ の銅箔上に乾燥後の厚さが  $\mathbf{1}$   $\mathbf{1}$   $\mathbf{0}$   $\mathbf{\mu}$   $\mathbf{m}$  になるように塗  $\mathbf{50}$   $\mathbf{-0}$  で挟み照度  $\mathbf{6}$   $\mathbf{0}$   $\mathbf{m}$   $\mathbf{w}$   $\mathbf{/c}$   $\mathbf{m}^{2}$  (トプコン製 $\mathbf{U}$   $\mathbf{V}$   $\mathbf{5}$   $\mathbf{x}$   $\mathbf{y}$ 

布し、乾燥して集電体となる銅箔上に負極合剤層を形成 することによって負極を作製した。

【0033】 つぎに、エチレンカーボネートとプロピレ ンカーボネートとの体積比1:1の混合溶媒にLiPF 6 を1.0 mol/l溶解させた電解液を調製し、該電 解液に四官能以上の多官能モノマーとして六官能のジペ ンタエリスリトールヘキサアクリレートを4~10重量 %の範囲の濃度(すなわち、4重量%、6重量%、8重 量%、10重量%)になるように添加量を変えて添加 し、四官能以上の多官能モノマーを含有する電解液(以 下、この電解液を「モノマー含有電解液」という)を調 製した。

【0034】上記モノマー含有電解液を調製するにあた って、いずれの場合も、ジペンタエリスリトールヘキサ アクリレートの添加前に、電解液中に重合開始剤として 2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルフォスフ ィンオキサイド〔ルシリンTPO(商品名)、ビーエー エスエフジャパン (株) 製]を2重量%の濃度になるよ うに添加して溶解させておいた。

【0035】つぎに、このモノマー含有電解液を上記正 極、負極およびポリプロピレン不織布からなるセパレー タに含浸させ、紫外線を照射してモノマー成分を重合さ せるとともにゲル化させてゲル状ポリマー電解質とし て、正極、負極およびセパレータがそれぞれゲル状ポリ マー電解質を含有するようにした。その詳細を正極、負 極、セパレータの順に説明する。

【0036】正極へのモノマー含有電解液の含浸とその <u>硬化:</u>上記正極を38mm×68mmのサイズにし、そ れを上記モノマー含有電解液に 5 分間浸漬し、取出後、 30 そのモノマー含有電解液を含浸した正極をその両面から 厚さ50μmのPET (ポリエチレンテレフタレート) カバーで挟み照度60mw/cm² (トプコン製UVチ ェッカーUVR-T35による測定値)の紫外線ランプ で後記の表1に示すように30秒、10秒、6秒、3秒 間照射して、上記モノマー含有電解液中のモノマーを重 合させるとともに電解液をゲル化してゲル状ポリマー電 解質を含む正極を得た。

【 0 0 3 7 】 <u>負極へのモノマー含有電解液の含浸とその</u> <u>硬化:</u>上記負極を40mm×70mmのサイズにし、そ れを正極の場合と同様のモノマー含有電解液に5分間浸 潰し、以後、正極の場合と同様に、紫外線照射を行い、 上記モノマー含有電解液中のモノマーを重合させるとと もに電解液をゲル化してゲル状ポリマー電解質を含む負 極を得た。

【0038】セパレータへのモノマー含有電解液の含浸 <u>とその硬化:</u>厚さ50μmのポリプロピレン不織布から なるセパレータを上記モノマー含有電解液中に 5 分間浸 潰した後、取り出し、そのモノマー含有電解液を含浸し たセパレータをその両面から厚さ 5 0 μmのPETカバ

カーUVR-T35による測定値)の紫外線ランプで後 記の表1に示すように30秒、10秒、6秒、3秒間照 射し、上記モノマー含有電解液中のモノマーを重合させ るとともに電解液をゲル化してゲル状ポリマー電解質含 むセパレータを得た。

【0039】<u>電池の組立て:</u>上記のようにゲル状ポリマ 一電解質を含有させた正極、セパレータおよび負極をそ の順に重ね合わせてユニットセルを作製した。そして、 正極および負極から端子を引き出し、ポリエステルフィ ルムーアルミニウムフィルムー変性ポリオレフィンフィ ルムの三層構造のラミネートフィルムからなる外装体で ユニットセルを覆い、その周囲をヒートシールして密閉 化し評価用電池を作製した。上記ユニットセルの作製に あたり、正極と負極はそれぞれの合剤層がセパレータを 介して対向するように配置し、また、上記ユニットセル の外装にあたり、ラミネートフィルムはその変性ポリオ レフィンフィルムが正極および負極の集電体に対向する ように配置した。

【0040】ここで、上記電池の概略構造を図1を参照 しつつ説明すると、正極1と負極2との間にセバレータ 20 が、強固なゲルで電解液の遊離もない。 3が配置してユニットセルが構成され、そのユニットセ ルをポリエステルフィルムーアルミニウムフィルムー変 性ポリオレフィンフィルムの三層構造のラミネートフィ ルムからなる外装体 4 で外装し、正極 1 および負極 2 か ら正極端子5および負極端子6を外装体4の外部に引き 出して電池が構成されている。

【0041】得られた12種類の電池の残存モノマー 量、ゲルの性状、負荷特性および負極表面へのリチウム の析出を調べた。その結果を表1に示す。負荷特性は電

池を4.2 V、0.2 Cの定電流定電圧で8時間充電 し、電流密度1Cと0.2Cでそれぞれ2.75Vまで 放電して放電容量を測定し、その電流密度1Cで放電し たときの放電容量を電流密度0.2℃で放電した時の放 電容量で除した比率 [(10の放電容量/0.20の放 電容量)×100]で示す。また、残存モノマー量はゲ ル状ポリマー電解質形成後の負極からエチレンカーボネ ートとプロピレンカーボネートとの混合溶媒に負極を2 4時間浸漬して残存モノマーを抽出し、紫外線吸光度で 10 その量を求め、その結果を投入モノマー量に対する比率 で表1に示す。この残存モノマー量と表1に記載のジベ ンタエリスリトールヘキサアクリレートの濃度から電解 液総量に対する残存モノマー量を求めることができる。 また、ゲル状ポリマー電解質のゲルの状態を肉眼で観察 し、その観察結果を次の評価基準により記号化して表 1

【0042】◎:PETカバーへの付着がなく、強固な ゲルで電解液の遊離もない。

〇:PETカバーからの剥離性は上記回の場合より低い

△:PETカバーから剥離し難く、電解液の遊離も一部 認められる。

×:ゲルの強度が弱く、電解液と分離する。

【0043】また、負極表面へのリチウムの析出は、電 池を分解し、負極表面の電子顕微鏡写真によって調べ た。その結果を表1に示す。

[0044]

【表1】

に示す。

T -1 1 -

ジベンタエリス リトールヘキサ アクリレートの 濃度(%)	負極の残存 モノマー量 (%)	ゲルの状 態	負荷特性 (%)	負極表面への リチウムの析 出	照射時間(秒)
4	1 0	0	9 7	なし	3 0
4	30	ŏ	97.3	なし	10
4	40	o	97	なし	6
4	50	×液遊離	9 7	わずかに発生	3
6	10	0	96	なし	3 0
6	3 0	0	96	なし	10
6	40	0	96	なし	6
6	50	△液遊離	9 5	わずかに発生	3
8	10	•	9 5	なし	3 0
8	3 0	0	95. 2	なし	10
8	40	0	9 5	なし	6
8	5 0	〇液遊離	9 4	わずかに発生	3
10	10	0	8 5	なし	3 0
10	3 0	0	9 0	なし	10
10	4 0	0	9 1	なし	6
10	5 0	0	9 2	発生	3

【0045】表1に示す結果から明らかなように、電解 液中のジペンタエリスリトールへキサアクリレートの濃 度が4~10%の範囲では、いずれの場合も、残存モノ キサアクリレートが10%のときに残存モノマー量が電 解液総量に対して3%になる)以下にすると、ゲルの状 態が良好で、負荷特性が優れ、負極表面へのリチウムの 析出がないが、残存するモノマー量が50%になると、 ゲルが液遊離を起こすようになり、また、負極表面への リチウムの析出が生じるようになる。上記のような液遊 離は漏液を生じる原因になり、負極表面へのリチウムの 析出は負荷特性の低下、容量の低下、ひいては短絡など の危険性を生じて安全性を低下させることになる。

【0046】なお、重合率を高めるために、重合開始剤 を増加することも可能であることから、重合開始剤 (2, 4, 6-トリメチルベンゾイルジフェニルフォス フィンオキサイド)を通常量の3倍、10倍にして、同 じ反応時間(紫外線照射時間)3秒で検討したが、重合 開始剤の使用量が3倍の時は残存モノマー量が35% で、重合開始剤の使用量が10倍の時は残存モノマーが 20%であり、ゲルの性状、負荷特性、リチウムの析出 状態などは、重合開始剤を適量使用した場合と同じよう な傾向を示した。しかし、重合開始剤の使用量を3倍や 10倍に増やしたものでは、電池の充放電中にわずかで 50

はあるが膨れが生じ、ガス発生が認められた。

【0047】また、表1に示すように、負極表面に析出 するリチウム量は、残存するモノマー量が多いと増加す マー量を30% (この場合、ジベンタエリスリトールへ 30 るが、絶対量との関係が必ずしも一致しない。ゲル状ポ リマー電解質中のポリマー(電解液への投入モノマー) の絶対量が増加すると、ゲル状ポリマー電解質の強度が 増し、架橋構造も緻密になるため、遊離モノマーがリチ ウムイオンに配位するのが妨げられ、リチウムイオンの 炭素層間への侵入を阻害する機会が減少するので、残存 モノマー量が増えても、負極表面へのリチウムの析出量 がそれほど増加しない。

> 【0048】以上のように、ゲル状ポリマー電解質中の 残存モノマー量が投入モノマー量の40%以下でかつ電 解液総量の3%以下であれば、実用上の悪影響がなく、 かつ生産性においても重合時間を短縮することができる ようになる。

#### [0049]

【発明の効果】以上説明したように、本発明では、ゲル 状ポリマー電解質の強度を維持し、負荷特性が優れたポ リマー電解質電池を提供することができた。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に係るポリマー電解質電池の一例を示す 断面図である。

#### 【符号の説明】

(7)

特開2000-188129

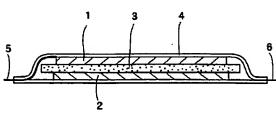
12

1 正極

2 負極

3 セパレータ

【図1】



フロントページの続き

(72)発明者 久世 定 大阪府茨木市丑寅一丁目1番88号 日立マ クセル株式会社内

11

F ターム(参考) 5H029 AJ11 AK03 AL06 AM00 AM03 AM05 AM07 AM16 BJ04 DJ09 EJ12 HJ01 This Page Blank (uspto)

## This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning Operations and is not part of the Official Record

### **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Def	fects in the images include but are not limited to the items checked:
	☐ BLACK BORDERS
C	☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
C	☐ FADED TEXT OR DRAWING
	☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
. [	☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
Ū	COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
Į	☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
Ţ	☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
C	☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY

## IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

OTHER:

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

This Page Blank (uspto)